



Translation

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 1.1986 PCT	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE2003/001924	International filing date (day/month/year) 10 June 2003 (10.06.2003)	Priority date (day/month/year) 13 June 2002 (13.06.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C04B 35/495		
Applicant FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.
- ☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 20 December 2003 (20.12.2003)	Date of completion of this report 02 November 2004 (02.11.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE2003/001924

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
 pages _____ 1-7 _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____ 1-9 _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the drawings:
 pages _____ 1/1 _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations**1) Reference is made to the following documents:**

- D1: EP-A-0 275 151 (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD)
20 July 1988 (1988-07-20)
- D2: US-A-4 752 594 (MATSUMOTO KAZUTOSHI ET AL)
21 June 1988 (1988-06-21)
- D3: EP-A-0 252 668 (SUMITOMO METAL MINING CO)
13 January 1988 (1988-01-13)
- D4: US-A-6 017 504 (VAN NESTE ANDRE ET AL)
25 January 2000 (2000-01-25)
- D5: EP-A-0 838 446 (NGK SPARK PLUG CO) 29 April 1998
(1998-04-29)
- D6: US-B1-6 319 614 (BEELE WOLFRAM) 20 November 2001
(2001-11-20)
- D7: BHALLA A S ET AL: "The perovskite structure - a
review of its role in ceramic science and
technology" MATERIALS RESEARCH INNOVATIONS, NOV.
2000, SPRINGER-VERLAG, GERMANY, Vol. 4, No. 1,
pages 3-26, XP002255214 ISSN: 1432-8917
- D8: DE 100 56 617 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH)
29 May 2002 (2002-05-29)

- 2.1) The perovskites mentioned in claims 1 and 7 are
already known from documents D1 to D8. What is

completely unknown, however, is the fact that these known perovskites could be used as a heat-insulating layer disposed on the surface of a component. In other words, a layer system comprising a component and a perovskite heat insulating layer is completely unknown. **Independent claims 1 and 7 are therefore considered novel over D1 to D8.**

- 2.2 The invention addresses the **problem** of providing a heat insulating material for a heat insulating layer that meets the requirements in respect of low thermal conductivity, high thermal coefficient of thermal expansion, high sintering temperature and at the same time good phase stability up to temperatures of more than 1300°C. The invention also addresses the problem of providing components that are subjected to temperature with this type of heat-insulating layer. **Solution:** these problems are solved by a layer system having all the features of independent claim 1 and by a method for the production thereof having all the features of independent claim 7. Documents D1 to D8, taken either alone or in combination, do not suggest that perovskites can be used as a heat-insulating layer on the surface of a component. No such problem is mentioned in D1 to D8. Consequently, documents D1 to D8 do not form a good starting point for arriving at the claimed subject matter. **Consequently, independent claims 1 and 7 are considered inventive in relation to D1 to D8, taken either alone or in combination.**

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 03 NOV 2004



WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1.1986 PCT	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 03/01924	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 10.06.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 13.06.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C04B35/495		
Anmelder FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
 - I ☒ Grundlage des Bescheids
 - II ☐ Priorität
 - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
 - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 20.12.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 02.11.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Fortunati, T Tel. +49 89 2399-8561 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-7 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-9 eingereicht mit dem Antrag

Zeichnungen, Blätter

1/1 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/DE 03/01924

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- | | |
|--------------------------------|--------------------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-9 |
| | Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-9 |
| | Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-9 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

1) Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1: EP-A-0 275 151 (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD) 20. Juli 1988 (1988-07-20)
- D2: US-A-4 752 594 (MATSUMOTO KAZUTOSHI ET AL) 21. Juni 1988 (1988-06-21)
- D3: EP-A-0 252 668 (SUMITOMO METAL MINING CO) 13. Januar 1988 (1988-01-13)
- D4: US-A-6 017 504 (VAN NESTE ANDRE ET AL) 25. Januar 2000 (2000-01-25)
- D5: EP-A-0 838 446 (NGK SPARK PLUG CO) 29. April 1998 (1998-04-29)
- D6: US-B-6 319 6141 (BEELE WOLFRAM) 20. November 2001 (2001-11-20)
- D7: BHALLA A S ET AL: "The perovskite structure-a review of its role in ceramic science and technology" MATERIALS RESEARCH INNOVATIONS, NOV. 2000, SPRINGER-VERLAG, GERMANY, Bd. 4, Nr. 1, Seiten 3-26, XP002255214 ISSN: 1432-8917
- D8: DE 100 56 617 A (KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH) 29. Mai 2002 (2002-05-29)

2) Was den Punkt V angeht:

2.1) Zwar sind die Perowskiten, die in den Ansprüchen 1 und 7 erwähnt werden, aus den Dokumenten D1 bis D8 bereits bekannt. Was jedoch völlig unbekannt bleibt, ist die Tatsache, dass diese bekannten Perowskiten als eine auf der Oberfläche eines Bauteils angeordnete Wärmedämmschicht verwendet werden könnten. Anders gesagt ist ein Schichtsystem - umfassend ein Bauteil und eine Perowskite-Wärmedämmschicht - völlig unbekannt. **Die unabhängigen Ansprüche 1 und 7 werden daher gegenüber D1 bis D8 als neu angesehen.**

2.2) **Aufgabe** der Erfindung ist es, einen Wärmedämmstoff für eine Wärmedämmschicht zur Verfügung zu stellen, welche die Anforderungen an eine niedrige Wärmeleitfähigkeit, einen hohen thermischen Ausdehnungskoeffizienten, eine hohe Sintertemperatur und gleichzeitig eine gute Phasenstabilität bis zu Temperaturen über 1300 °C erfüllt. Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung thermisch beanspruchte Bauteile mit einer solchen Wärmedämmschicht zur Verfügung zu stellen. **Lösung:** Diese Aufgabe wird gelöst durch ein Schichtsystem und ein Verfahren dessen Herstellung mit der Gesamtheit der Merkmale der Hauptansprüche 1 und 7. Dass Perowskiten als Wärmedämmschicht auf der Oberfläche eines Bauteils eingesetzt werden könnten, geht aus den Dokumenten D1 bis D8, allein oder kombiniert, nicht hervor. Eine solche

Aufgabe wird in D1 bis D8 nicht erwähnt. D1 bis D8 bilden daher keinen guten Anfangspunkt, um an den beanspruchten Gegenstand zu gelangen. **Die unabhängigen Ansprüche 1 und 7 werden daher gegenüber D1 bis D8, allein oder kombiniert, als erfinderisch angesehen.**

Patentansprüche

1. Schichtsystem umfassend ein Bauteil und ein auf der Oberfläche des Bauteils angeordnete Wärmedämmschicht, wobei die Wärmedämmschicht einen Schmelzpunkt oberhalb von 2500°C, einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von mehr als $8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ und eine Sintertemperatur von mehr als 1400°C aufweist, dadurch gekennzeichnet,
 - dass die Wärmedämmschicht eine Perowskitstruktur der allgemeinen Formel $A_{1+r} (B'_{1/3+x} B''_{2/3+y}) O_{3+z}$ aufweist, wobei gilt:
 - A = wenigstens ein Element der Gruppe (Ba, Sr, Ca, Be),
 - B' = wenigstens ein Element der Gruppe (Mg, Ca, Sr, Ba, Be),
 - B'' = wenigstens ein Element der Gruppe (Ta, Nb) und $-0,1 < r, x, y, z < 0,1$;
 - oder dass die Wärmedämmschicht eine Perowskitstruktur der allgemeinen Formel $A_{1+r} (B'_{1/2+x} B''_{1/2+y}) O_{3+z}$ aufweist, wobei gilt:
 - A = wenigstens ein Element der Gruppe (Ba, Sr, Ca, Be),
 - B' = wenigstens ein Element der Gruppe (Al, La, Nd, Gd, Er, Lu, Dy, Tb),
 - B'' = wenigstens ein Element der Gruppe (Ta, Nb) und $-0,1 < r, x, y, z < 0,1$.
2. Schichtsystem nach Anspruch 1, bei dem die Wärmedämmschicht eine Zusammensetzung mit $r = x = y = z = 0$ aufweist.
3. Schichtsystem nach einem der vorhergehenden Ansprüche 1 bis 2 mit der Zusammensetzung der Wärmedämmschicht gemäß der Formel $Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O_3$.
4. Schichtsystem nach einem der Ansprüche 1 bis 3, bei dem zwischen dem Bauteil und der Wärmedämmschicht eine oder mehrere Zwischenschichten aus keramischen, glasigen oder metallischen Werkstoffen angeordnet sind.

5. Schichtsystem nach vorhergehendem Anspruch 4, bei der zwischen dem Bauteil und der Wärmedämmschicht eine MCrAlY-Legierung mit $M = \text{Co, Ni}$ als Material für die Zwischenschicht angeordnet ist.
- 5 6. Schichtsystem nach einem der vorhergehenden Ansprüche 4 bis 5, bei der zwischen dem Bauteil und der Wärmedämmschicht eine (Platin-)Aluminidschicht als Material für eine Zwischenschicht angeordnet ist.
- 10 7. Verfahren zur Herstellung eines Schichtsystems nach einem der Ansprüche 1 bis 6, mit den Schritten
- die Ausgangsmaterialien der Wärmedämmschicht werden als Carbonate und/oder Oxide entsprechend der vorgenannten Stöchiometrie als Mischung vorgelegt,
 - diese Mischung wird einer Festkörperreaktion unterzogen, wobei der erzeugte Wärmedämmstoff die entsprechende Stöchiometrie und die Perowskitstruktur aufweist,
 - der so hergestellte Wärmedämmstoff wird auf die Oberfläche des Bauteils aufgebracht.
- 15
- 20 8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Mischung für die Wärmedämmschicht derart hergestellt wird, dass der Perowskit nach der Festkörperreaktion eine Zusammensetzung gemäß der Formel $A_{1+r} (B'_{1/3+x} B''_{2/3+y}) O_{3+z}$ oder gemäß der Formel $A_{1+r} (B'_{1/2+x} B''_{1/2+y}) O_{3+z}$ aufweist, wobei $-0,1 < r, x, y, z < 0,1$ ist.
- 25
9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, dass die Mischung für den Wärmedämmstoff derart hergestellt wird, dass der Perowskit nach der Festkörperreaktion eine Zusammensetzung gemäß der Formel $A_1 (B'_{1/3} B''_{2/3}) O_3$ oder gemäß der Formel $A_1 (B'_{1/2} B''_{1/2}) O_3$ aufweist.
- 30

BEST AVAILABLE COPY

GEÄNDERTES BLATT

20-12-2003